冷却速度制御による精密射出成形法の開発 第2報 各種樹脂で成形した円筒形状部品の収縮特性

今 泉 賢^{*1}・小 川 瑞 樹^{*1}・北 山 二 朗^{*1}・横 井 秀 俊^{*2}

Development of Precision Injection Molding by Cooling Rate Control Part II Shrinkage Characteristics of Cylindrical Parts Molded with Various Plastics

Imaizumi, Masaru^{*1}/Ogawa, Mizuki^{*1}/Kitayama, Jiro^{*1}/Yokoi, Hidetoshi^{*2}

In this study, we applied our new process “precision injection molding by cooling rate control” to cylindrical products and investigated the shrinkage mechanism of various resins. With this method, the molded product is rapidly cooled, after which the parts requiring accuracy are left inside the mold and cooled locally to control shrinkage. We particularly focused on the four factors, initial mold temperature, cooling method, cooling time, and time waited for rapid cooling to investigate their effects on shrinkage characteristics. For resins whose glass transition temperature (T_g) was below room temperature, shrinkage control effects could be obtained from this molding method when the initial mold temperature was above room temperature. On the other hand, for resins whose T_g was above room temperature, shrinkage control effects could be obtained only when the initial mold temperature was above T_g . When below T_g , our new method was not better than normal molding methods. Moreover, when the initial mold temperature rose by more than about 70°C above T_g , the temperature differed according to the method used for cooling the molded product. Shrinkage could be controlled better when the molded product was rapidly cooled from outside the mold than inside the mold. With PA 66 and PBT, shrinkage could be controlled by extending the cooling time. This may be because the thermal stress occurring during cooling decreases with time. Furthermore, we found that extending the starting time of rapid cooling further improves the crystallinity of PP. These results clarified that our new method promotes crystallinity at moderate cooling, and controls shrinkage by rapidly cooling the molded product to improve accuracy.

Key words : Precision injection molding, Cooling rate control, Shrinkage characteristics

1. 緒 言

成形品の寸法精度および形状精度は部品としての機能を決定付ける重要な要素である。しかし射出成形プロセスで

は樹脂の収縮が避けられないため、高精度化の妨げになっている。そこで著者らは「冷却速度制御による精密射出成形法」というプロセスを提案した¹⁾。精度を向上するための開発は日常的に行われており、例えば収縮を事前に予測して金型を補正する方法²⁾や、金型内の冷却配管や高熱伝導材の配置を最適化する方法がある^{3)~6)}。これらは成形品の部位ごとで異なる不均一な収縮に対し、金型の形状補正や冷却構造によってこれを制御し、一様に収縮させるものである。しかしこの方法は条件を固定して試行錯誤を繰り返す必要があり、形状やゲート位置などの条件を変更すると再びやり直しとなる。一方、樹脂の収縮自体を抑制する方法もある。例えば樹脂の中に低アスペクト比のガラスフィラーやタルクを配合して樹脂の収縮抑制と剛性向上を狙った方法^{7)~9)}がある。しかし配向分布によって収縮に異

^{*1} 三菱電機(株) 生産技術センター
尼崎市塚口本町 8-1-1 (〒661-8661)
Manufacturing Engineering Center,
Mitsubishi Electric Corporation
8-1-1 Tsukaguchi-Honmachi, Amagasaki, Hyogo, 661-8661,
Japan
Imaizumi.Masaru@eb.MitsubishiElectric.co.jp

^{*2} 東京大学 生産技術研究所
東京都目黒区駒場 4-6-1 (〒153-8505)
Institute of Industrial Science, The University of Tokyo
4-6-1 Komaba Meguro-ku, Tokyo, 153-8505, Japan
2012.4.9 受理

方向が生じ、その原因になることがある。また使用する樹脂が限定されるという問題もある。これに対し本成形法は成形品の冷却速度を制御して収縮抑制を狙った新しい方法である。樹脂に応じて適切な温度に加熱した金型に樹脂を充填し、高い精度が求められる成形品の部位を金型に保持させたまま局所的に急速冷却するプロセスである。このような金型を急加熱・急冷却する技術は、成形品の外観や金型表面の転写性を向上させる技術として一般的に知られているが^{10)~13)}、本成形法では金型で保持する特定の部位の収縮を抑制して精度を向上させることができ、既に流体の制御バルブや携帯電話の筐体・機構部品などの高精度部品に広く適用されている¹⁴⁾。

前報¹⁵⁾では、本成形法をポリフェニレンサルファイド (PPS) 製円筒形状部品に適用した場合について、円筒内周面の収縮特性と試験片の相対結晶化度、および耐圧強度を調査した。PPS のような結晶性樹脂を低温の金型で成形すると、収縮は抑制されるが、十分に結晶化が進行しないまま急速に固化するため、物性の低下や再結晶化に伴う経時的な変形が懸念される。しかし本成形法を適用すれば、充填時の金型温度（初期金型温度）を 120℃ 以上に加熱することで、緩やかな冷却速度のもとで PPS の結晶成長を促進させ、その後急速冷却することで離型後の収縮を抑制し、従来の成形法よりも成形精度（真円度）が向上できることを明らかにした。つまり本成形法は PPS の結晶化度や物性を確保しながら、成形品の収縮率を抑制し精度を向上させるための方法として有効であると言える¹⁶⁾。

しかし上記のような急速冷却による収縮抑制効果は、初期金型温度が 90℃ 以上の場合に限られることも前報で明らかになった。すなわち急速冷却したものは、初期金型温度によらずほぼ一定の収縮率となるが、急速冷却しない従来の成形法では、初期金型温度が 90℃ を境にして収縮特性が大きく変化した。金型温度が 90℃ 以下の場合には急速冷却の収縮率とほぼ一致するのに対し、90℃ 以上の場合には収縮率が増加し、急速冷却との差が生じる。この収縮率差が本成形法の収縮抑制効果である。なおこの 90℃ という温度は、PPS のガラス転移温度 ($T_g=92℃$) にほぼ一致していることから、上記の収縮特性は T_g が大きく関係していると考えられるが、詳細なメカニズムはまだ解明できておらず、プロセス条件を適正化できるまでには至っていない。

そこで本成形法を PPS 以外の樹脂にも適用し、円筒形状試験片の収縮特性と各樹脂の T_g の関係について調査した。また、収縮特性に影響を及ぼすと考えられる初期金型温度、冷却時間、冷却方式および急速冷却開始時間について、各因子を変化させた時の収縮の応答から、そのメカニズムについて検討した。

2. 実験方法

2.1 円筒形状試験片の成形方法と収縮率測定

図 1 に本実験で用いた金型キャビティを示す。試験片の収縮を一樣にし、収縮特性を考察しやすくするため、試験片は厚さ 3 mm の円筒形状とした。また、樹脂流動方向による収縮異方性の影響を抑えるために、ゲートはリングゲートを採用した。ゲートの厚さは 0.3 mm である。

Fig.1 Mold shape

図 2 に「冷却速度制御による精密射出成形法」の工程概略図を示す。ここでは図 1 の円筒内周面に高い精度を求めることを前提とし、この面を形成する金型のコアピンで試験片を拘束しながら局所的に急速冷却するようにしている。工程手順としては、まず成形する樹脂に応じて所定の温度に加熱した金型に樹脂を射出する（図 2(1)）。図には示していないが、金型には温調用の媒体回路を設け、温調機の水を循環させて温度を一定に保っている。この時の金型温度を初期金型温度 (T_M) と記す。このまま次の保圧・冷却工程へ移行し（図 2(2)）、所定の時間が経過した後、試験片をコアピンに保持させた状態で、コアピンを循環する媒体だけを 10℃ の冷水に切り替えて急速冷却する（図 2(3)）。樹脂が結晶性樹脂の場合、初期金型温度を適正な温度に設定すれば、試験片が急速に冷却されるのを防ぎ、急速冷却するまでに結晶化を促進させることができる。そして試験片を十分に冷却した後、コアピンから離型する（図 2(4)）。以上の一連の工程によって、全ての寸法を保証するものではないが、金型によって拘束する部位の収縮を抑制し、精度を向上させるものである。

実験では図 3 に示す 4 つの冷却方式でコアピン温度を制御した。①終始初期金型温度に保温し、冷却工程が終わると同時に金型を開き、試験片を離型する「型内通常冷却」、②冷却工程開始 10 s 後に、試験片をコアピンに保持させたまま金型を開き、円筒外周面を金型から解放させた状態で冷却を続行し、所定時間が経過した後離型する「型外通常冷却」、③冷却工程中は終始金型を閉じた状態で冷却するが、冷却工程開始 10 s 後にコアピンだけを 10℃ の冷水で急速冷却し、それ以外の金型は初期金型温度に保温したまま冷却を続行する「型内急速冷却」、④このコアピンの急速冷却を、試験片をコアピンに保持させたまま金型を開いた状態で行う「型外急速冷却」、である。従って、本研究で提案する「冷却速度制御による精密射出成形法」は上

Fig. 2 Injection molding by cooling rate control

- (1) Injection
- (2) Pressure holding / cooling
- (3) Rapid cooling
- (4) Demolding (Ejection)

Fig. 3 Cooling chart of core pin

記の③と④が該当する。

試験片の収縮率は、3次元測定機（カルツァイス社製 PRISMO Navigator 型式 7/9/5）で円筒内周面を測定して求めた。成形した試験片を常温（ここでは 20～23℃ とする）の環境下で 3 日以上放置した後、図 1 に示す深さ 40 mm の円筒内周面において円周方向に 15° 間隔で 24 点の空間座標を測定し、このデータから平均直径を求めた。そして常温におけるコアピン直径（20 mm）との差を算出し、収縮率を求めた。

2.2 収縮特性に影響を及ぼす因子と成形条件

表 1 に実験で用いた樹脂を示す。前報の実験結果で PPS の収縮特性が T_g に大きく関係していたことから、広範囲の T_g から樹脂を選定した。そして試験片を測定する環境温度と T_g の相対的關係に注目し、 T_g が常温以上の樹脂と常温より低い樹脂に分類した。ただし結晶構造を持たず融点が存在しない非晶性樹脂は、試験片の温度が T_g 以下でなければ形状を保持できず成形できないため、用いた樹脂の T_g は必然的に常温以上となる。

表 2 に成形条件を示す。前報から PPS の収縮特性は成形工程中の温度履歴にも関係すると推察されたため、本実験では①初期金型温度、②冷却時間、③冷却方式および④急速冷却開始時間に注目して成形条件を設定した。

まず①初期金型温度については、下限は常温の 20℃、

上限は媒体の水を温調機で加熱できる 160℃ とした。ただし樹脂によっては固化しない場合があるので、表 2 に示す通り試験片が十分に固化して離型できる限界の温度にそれぞれ設定した。また②冷却時間については、30 s と 60 s に設定して収縮特性を比較した。そして③冷却方式については、型外冷却と型内冷却を比較した。本成形法の特徴であるコアピンの冷却制御は、図 3 で示したように金型を閉じた状態で行う型内冷却と、金型を開いた状態で行う型外冷却があり、前者は試験片の円筒外周面が初期金型温度に保持された金型に接した状態で冷却されるのに対して、後者は円筒外周面を対流する空気中で冷却される。つまり円筒外周面における温度と熱伝達率の違いが、試験片の収縮に影響を与えると考えられる。最後に④急速冷却開始時間は、結晶成長を左右する重要なパラメータになると推察される。急速冷却を開始するまでの時間は冷却速度が緩やかで結晶は十分に成長するが、急速冷却によってそれが阻害され、収縮特性に影響を及ぼす可能性がある。そこでこの影響を顕著に再現するために、表 1 に示した樹脂の中から結晶化温度が低く、結晶化ピークが現れる温度が設定する初期金型温度と同程度のポリプロピレン（PP）を選んだ。そして初期金型温度を 120℃ に設定し、図 4 に示した冷却チャートでコアピンを冷却した。ここでは先に説明した 2 つの冷却方式のうち型内冷却方式に限定し、①型内通常冷却と③型内急速冷却を比較した。一連の成形工程のうち、射出工程が終わった時点を開始点として急速冷却するまでの時間を急速冷却開始時間と定めた。この間は 120℃ の初期金型温度で 0～180 s 間保持して結晶化を促進させた。型内急速冷却については、急速冷却開始時間が経過した後、その時の成形工程の状態に関係なく 10℃ の水でコアピンを急速冷却し、50 s 経過した後に金型を開き離型した。一方、型内通常冷却はこの間も初期温度に保持し続けた。

3. 実験結果および考察

3.1 収縮特性に及ぼす初期金型温度の影響

表 1 に示した各種樹脂を用いて、初期金型温度を変化させた時の収縮率を調べた。ここでは各種樹脂の熱伝導率や

Table 1 Molding materials

	Resin	Grade (Company)	T_g (°C)	T_m (°C)
Crystalline resin	$T_g \geq T_r$	SPS S 100 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.)	100	270
		PA 66 CM 3001-N (Toray Industries, Inc.)	50	265
		PBT 2002 (Polyplastics Co., Ltd.)	22	227
	$T_g < T_r$	PP MA 3 (Japan Polypropylene Corporation)	-20	188
		POM M 90 S (Polyplastics Co., Ltd.)	-50	183
		HDPE HJ 560 W (Japan Polyethylene Corporation)	-128	120
Amorphous resin	$T_g \geq T_r$	PC S 3000 R (Mitsubishi Engineering-Plastics Corp.)	151	-
		PMMA LG (Sumitomo Chemical Co., Ltd.)	105	-

T_g : Glass-transition temperature T_r : Room temperature T_m : Melting temperature

Table 2 Injection molding conditions

Resin	SPS	PA 66	PBT	PP	POM	HDPE	PC	PMMA
Resin temp. (°C)	300	285	260	220	210	190	300	230
Initial mold temp. (T_M) * (°C)		20, 40, 60, 80, 90, 100, 110, 120, 140, 160						
* T_M of the upper limit (°C)	160	160	160	120	120	110	140	100
Injection rate (cm ³ /s)					19			
Injection time (s)					1			
Holding pressure (MPa)					50			
Pressure holding time (s)					10			
Cooling time (t_c) (s)					30, 60

Fig. 4 Cooling chart of core pin (Effect of time on rapid cooling)

比熱などの熱物性値の違いにより、冷却途中における試験片温度の影響を無視できるように、冷却時間を 60 s に設定して試験片内部の温度が定常となるよう冷却した。

まず図 5(a)、図 6(a) および図 7(a) に、結晶性樹脂のうち T_g が常温以上のシンジオタクチックポリスチレン (SPS)、ポリアミド 66 (PA 66) およびポリブチレンテレフタレート (PBT) の初期金型温度に対する収縮率変化を示す。図 5(a) に示した SPS については、急速冷却した③型内急速冷却および④型外急速冷却の収縮率は、初期金型温度によらずほぼ一定であるのに対し、通常冷却した①型内通常冷却および②型外通常冷却の収縮率は、初期金型温度が 100°C 以上になると、徐々に増加して急速冷却との差が広がった。つまり初期金型温度の上昇に伴って急速冷却による収縮抑制効果は高くなる。しかし初期金型温度が 100°C よりも低い条件では、通常冷却の収縮率はほぼ一定となり、収縮抑制効果は消滅する。このように SPS の収縮特性は 100°C を境にして大きく変化しており、SPS の T_g

も 100°C であることから、両者は一致することが確認された。また図 6(a) および図 7(a) に示した PA 66 および PBT の収縮特性については、急速冷却した③型内急速冷却および④型外急速冷却の収縮率が、高温の初期金型温度ほど差が生じる（詳細は後述する）こと以外、SPS と同じ傾向を示し、PA 66 では 50°C、PBT では 20°C で通常冷却と急速冷却の収縮率差が消滅する。そして PA 66 の T_g は 50°C、PBT の T_g は 22°C であることから、いずれの温度も T_g に一致することが確かめられた。以上の結果から、 T_g が常温以上の結晶性樹脂は、試験片を金型に保持させた状態で急速冷却すると、温度低下に伴う熱収縮の多くは流動性のある非晶部分で吸収されるが、さらに T_g 以下まで冷却されると非晶部分は流動性を失って固化した状態になり、それ以降離型するまでの熱収縮は試験片内部に作用する熱応力に置き換えられる。そしてこの熱応力は離型後に解放されるため試験片は弾性変形し、さらに離型直後の温度から常温に至るまで熱収縮する。従って T_g から常温までの熱収縮は、離型時の温度によらず一定の収縮率になると推察される。通常冷却した場合でも初期金型温度が T_g 以下であれば、同じメカニズムで収縮率は一定となり、急速冷却と一致する。

次に図 8(a)、図 9 および図 10 に、結晶性樹脂のうち T_g が常温よりも低いポリアセタール (POM)、ポリプロピレン (PP) および高密度ポリエチレン (HDPE) の初期金型温度に対する収縮率変化を示す。急速冷却した試験片の収縮率は、初期金型温度によらずほぼ一定である。これに対して通常冷却した収縮率は、初期金型温度が高いほど増加して急速冷却との差が広がるので、急速冷却による収縮抑制効果は高くなる。しかし初期金型温度が低くなるとそ

(a) Cooling time : 60s

(b) Cooling time : 30s

Fig. 5 Effect of initial mold temperature on SPS product shrinkage

(a) Cooling time : 60 s

(b) Cooling time : 30 s

(a) Cooling time : 60s

(b) Cooling time : 30s

Fig. 6 Effect of initial mold temperature on PA 66 product shrinkage

(a) Cooling time : 60 s

(b) Cooling time : 30 s

(a) Cooling time : 60s

(b) Cooling time : 30s

Fig. 7 Effect of initial mold temperature on PBT product shrinkage

(a) Cooling time : 60 s

(b) Cooling time : 30 s

(a) Cooling time : 60s

(b) Cooling time : 30s

Fig. 8 Effect of initial mold temperature on POM product shrinkage

(a) Cooling time : 60 s

(b) Cooling time : 30 s

Fig. 9 Effect of initial mold temperature on PP product shrinkage (Cooling time : 60 s)

Fig. 10 Effect of initial mold temperature on HDPE product shrinkage (Cooling time : 60 s)

の差は徐々に縮まり、40～60℃の比較的常温に近い温度でついに一致する。POMの T_g は -50°C 、PPの T_g は -20°C 、HDPEの T_g は -128°C であるが、 T_g が常温よりも低い結晶性樹脂の場合は、収縮抑制効果が消滅する温度は必ずしも T_g に一致しないことが明らかになった。これは試験片の測定は常温下で行われるため、常温を基準にして考える必要があり、初期金型温度が常温に近い状態から急速冷却しても、通常冷却と比較して有意的な温度差が生じないため、両者の収縮率に明瞭な違いが現れなかったと考えられる。

最後に図11および図12に、非晶性樹脂のポリカーボネート(PC)とポリメタクリル酸メチル(PMMA)の収縮特性を示す。初期金型温度によらず通常冷却と急速冷却による収縮率の差はほとんど現れないことが明らかになった。非晶性樹脂は T_g 以上では固化しないため、離型時の金型温度は少なくとも T_g 以下でなければ成形できない。図5(a)、図6(a)および図7(a)に示した T_g が常温以上の結晶性樹脂も、初期金型温度が T_g 以下では通常冷却と急速冷却に収縮率の差が現れなかったが、上記の非晶性樹脂はこれと同様のメカニズムだと考えられる。以上の結果が

Fig. 11 Effect of initial mold temperature on PC product shrinkage (Cooling time : 60 s)

ら本成形法を非晶性樹脂に適用した場合、急速冷却による収縮抑制効果は得られないと言える。

なお、初期金型温度に対する収縮特性では、もう1つ特

Fig.12 Effect of initial mold temperature on PMMA product shrinkage (Cooling time : 60 s)

微的な傾向が結晶性樹脂で確認された。それは通常冷却した①型内通常冷却と②型外通常冷却の収縮率変化である。いずれの結晶性樹脂も初期金型温度の上昇に伴って収縮率は増大するが、 T_g が常温以上の樹脂と常温未満の樹脂で、その増大傾向に違いを確認できた。まず図5(a)、図6(a)および図7(a)に示した T_g が常温以上のSPS、PA 66およびPBTの収縮率変化は、初期金型温度に対して単調に増大するのではなく、高温になるほどその増大率（初期金型温度に対する収縮率変化の傾き）が抑えられている。逆に図8(a)、図9および図10に示した T_g が常温未満のPOM、PPおよびHDPEについては、初期金型温度の上昇に伴って収縮率の傾きは増す傾向である。このような収縮特性を示すのは、ここで取り上げた T_g が常温未満の結晶性樹脂は結晶化温度が低く、実験で設定した初期金型温度範囲の直上付近で結晶化すると考えられるため、金型温度が高温であるほど結晶化に伴う収縮が大きくなると推察される。一方 T_g が常温以上の結晶性樹脂は、設定した初期金型温度範囲からさらに高い温度で結晶化する。そのため、結晶化が進展して剛性が向上した試験片はその後の温度低下に伴って熱応力が発生し、同時に応力緩和も進行すると考えられる。特に高温の金型内では緩和の進行が早く、離型後の収縮を抑制する効果があると推察される。以上のメカニズムについては粘弾性モデルに基づく解析が有効であると考えられ、今後の課題とされる。

3.2 収縮特性に及ぼす冷却時間の影響

冷却時間は、時間を延長することで試験片内部の温度が変化するとともに、金型（コアピン）に拘束される実質的な時間が変化するため、収縮特性に影響を及ぼすと考えられる。そこで前節で示した冷却時間が60 sの結果と、30 sに設定した時の収縮特性を比較した。

T_g が常温以上のSPS、PA 66およびPBTについて、冷却時間が30 sの場合の初期金型温度に対する収縮率変化を図5(b)、図6(b)および図7(b)に示す。また T_g が常温未満のPOMの結果を図8(b)に示す。なおPPとHDPEの結果はPOMと同じ傾向を示したので、ここでは省略する。

まず冷却時間が60 sの場合、図5(a)～図8(a)および図9、図10に示したように急速冷却した結晶性樹脂の収縮率は、PA 66とPBTの型内急速冷却を除き、初期金型温度に対してほぼ一定である。一方冷却時間を30 sに短縮す

ると、初期金型温度の上昇に伴って急速冷却した収縮率は増大し、通常冷却との差を縮める結果となった。冷却時間を30 sに設定した場合、コアピンを急速冷却する実質的な時間は20 sであるため、急速冷却の影響は試験片の表層近傍しか及ばないと考えられる。そして初期金型温度が高いほど試験片は十分に冷却されないまま離型され、その後の温度低下に伴って収縮が増大する。さらに冷却速度が緩やかになることで結晶化が促進し、これに伴う収縮も増大する。以上の収縮特性は各種樹脂の熱伝導率、比熱および密度などの物性値によって変化すると考えられる。

また、PA 66とPBTについては次の特徴的な収縮特性を確認できた。冷却時間を60 sと30 sに設定した図6(a)と図6(b)、または図7(a)と図7(b)の結果を比較すると、初期金型温度が20°Cの収縮率に明らかな差があるように、30 sの方が全般的に収縮率が高いことが分かる。特にPBTはこの傾向が顕著に表れている。しかしそれ以外の樹脂は30 sと60 sの収縮率はほぼ等しい。冷却時間の違いによる離型時の試験片温度の差が考えられるが、これ以外にも次のような原因が推察される。まずPA 66とPBTに共通することは、 T_g が常温以上であり、かつ常温に近いことである。本成形法の場合、試験片がコアピンに拘束されている間は温度低下に伴って熱応力が発生するが、その時の試験片温度によっては同時に応力緩和も起こりうる。そして T_g 近傍の温度では弾性率をはじめ樹脂の物性が大きく変化する。よって T_g をどの程度の冷却速度で通過するか、 T_g 付近の温度で試験片をどれだけの時間拘束するかで、熱応力の発生と応力緩和のバランスが決まり、収縮率が決定されたと考えられる。今回の実験では10°Cの水で急速冷却したので、試験片は常温近くでコアピンに拘束されていたことになる。従って T_g が常温に近いPA 66とPBTにおいて、冷却時間の影響が顕著に現れたと推察される。ただし、熱応力の発生と応力緩和のバランスで収縮率が決定するメカニズムについては、今後詳細な検討が必要である。

なお図示はしないが、非晶性樹脂のPC、PMMAの収縮特性については、冷却時間を60 sから30 sに短縮しても明確な差異は確認されなかった。

3.3 収縮特性に及ぼす冷却方式の影響

本実験では図3に示したように、通常冷却もしくは急速冷却において、それぞれ型内冷却と型外冷却の2つの冷却方式によって成形した。この円筒外周面における温度境界条件の違いが収縮特性に影響を及ぼすと考えられ、冷却時間を60 sとし同一条件のもとで収縮特性を比較すると以下のことが明らかになった。

まず通常冷却について、図5(a)に示したSPSには型外冷却と型内冷却の収縮率に差は確認されないが、図6(a)および図7(a)に示したPA 66およびPBTは、 T_g 以上の初期金型温度で、型外冷却の収縮率が型内冷却よりもわずかに上回った。さらに図8(a)、図9および図10に示した T_g が常温未満のPOM、PPおよびHDPEはその差が明瞭に表れた。これは、型外冷却では空気が対流する円筒外周面の冷却速度が金型と接触する円筒内周面に比べて遅くなり、肉厚方向の温度分布に偏りが生じる。そして離型時には円筒外周面側の温度が高くなる。一方型内冷却は、円筒

の両面とも金型と接触した状態で均一に冷却される。この肉厚方向の冷却速度の違いが円筒内周面の収縮に影響を与えると考えられる。特に T_g が常温近傍もしくは常温未満の樹脂は、依然として非晶部分は流動状態にあり、離型後の収縮が大きくなると考えられる。

次に急速冷却については、PA 66 と PBT を除き型外冷却と型内冷却に顕著な差が現れなかった。これは、試験片の円筒内周面側は金型のコアピンに抱き付きながら積極的に急速冷却されるのに対し、円筒外周面側の温度は冷却方式によって異なるものの、円筒内周面側よりも冷却速度が遅いため、肉厚方向に温度勾配が生じる。しかし円筒内周面側の急速冷却の方が支配的であるため、円筒外周面側の影響が相対的に小さくなり、冷却方式による収縮率差は明瞭に現れなかったと考えられる。しかし、型内冷却においては、円筒外周面は金型と接触し続けるので、初期金型温度が高くなれば肉厚方向の温度勾配がさらに大きくなる。その結果、円筒外周面側の温度は無視できなくなり、これが図 6(a) の PA 66 および図 7(a) の PBT の結果に現れたと考えられる。すなわち PA 66 は初期金型温度が 120℃ 以上、PBT は 80℃ 以上で、型内冷却の収縮率の方が型外冷却よりも徐々に上回った。通常冷却と急速冷却の収縮率差が消滅する T_g を基点にすると、それよりも 60~70℃ 以上高い初期金型温度でこの傾向は現れ始めた。大きな温度勾配が生じた状態で試験片がコアピンから離型されると、円筒外周面側が持つ熱で円筒内周面側の温度が再び T_g 以上、もしくは変形する温度まで上昇し、その後冷却される過程で収縮が増大したと考えられる。従ってこの現象は他の結晶性樹脂でも現れると推察され、通常冷却と急速冷却の収縮率差が消滅する温度を基点にして、上記の温度よりも高い初期金型温度においては、上述の現象が現れる可能性が示唆される。図 5(a) の SPS の結果には、これがわずかに現れ始めているのが確認できる。

3.4 収縮特性に及ぼす急速冷却開始時間の影響

図 13 に急速冷却開始時間に対し、PP の収縮率と結晶融解熱（以降融解熱と記す）の変化を示したグラフを示す。急速冷却開始時間とは射出工程が終わった時点、つまり保圧工程を開始する時点を中心として急速冷却を開始するまでの時間である。急速冷却する実質の時間は 50 s で一定としているので、急速冷却開始時間に 50 s を加えた時間が、保圧時間と冷却時間の和に相当する。また融解熱とは、成形した試験片の円筒内周面から測定試料を採取し、示差走査熱量測定（DSC）で測定した結晶の融解に必要な熱量であり、結晶の成長度合いの指標とした。まず型内通常冷却においては、120℃ の高温の金型内で保持されている時間、すなわち保圧・冷却時間が長いほど融解熱は上昇し、結晶化が促進していることが分かる。また型内急速冷却においては、結晶が成長している過程で急速冷却するため、結晶の成長が阻害され、通常冷却よりも融解熱が低くなっている。しかし急速冷却開始時間を延長することで結晶成長の阻害を抑制することができ、融解熱が高まったと考えられる。

これを確認するために、DSC による等温結晶化測定で結晶化に要する時間を測定した。220℃ に溶解した PP を、結晶化すると考えられる 100℃~140℃ の所定温度まで急

速に冷却し、その温度に到達後一定に保持した。この間に発生する結晶化の発熱ピークを、時間の経過とともに測定した。図 14 に測定結果を示す。各保持温度における熱量変化は縦軸方向にシフトさせて表示した。ここでは保持温度 100℃、110℃ および 120℃ で、図中に示す a、b および c の発熱ピークが現れている。保持温度が 130℃ の条件では結晶化が完了するまでに約 1800 s を要したため、同図内ではピークが表示されず、140℃ の条件ではピークを確認できなかった。つまり保持温度が低いほど、結晶化が完了するまでの時間が短縮されている。今回の実験では初期金型温度を 120℃ に設定したが、120℃ 一定の条件下では結晶化が図中の d で開始して e で完了するまでにおよそ 150 s を要することが見込まれる。この結果から図 13 で示された融解熱の上昇は、高温に保持された状態で結晶化が促進した結果であり、急速冷却したものが通常冷却の融解熱よりも下回るのは、成長中の結晶化を急速冷却が阻害した結果であると言える。なお参考のために、PP の成形条件として一般的に設定される初期金型温度を 40℃、冷却時間を 60 s として型内通常冷却した場合の融解熱を図中の◎に示すが、高温状態で保持することで結晶化がより促進していることが確認される。

一方、図 13 の収縮率については、通常冷却と急速冷却の収縮率は実質的に冷却時間を延長することで減少するが、

Fig.13 Effect of time to rapid cooling on mold shrinkage and heat of fusion

Fig.14 Isothermal crystallization of PP

両者の差は徐々に縮まった。急速冷却したものは結晶が成長途中であっても急速に凍結されるために収縮は抑制されるが、通常冷却した試験片は離型後においても緩やかな冷却速度のもとで結晶化が進展するため、それに伴う収縮は避けられない。従って、120℃の高温の金型に保持されている間に結晶化に伴う収縮が進展すれば、離型後の収縮が抑制されると考えられる。しかし、通常冷却と急速冷却では、離型時の試験片温度が異なるため、結晶化が完全に完了したとしても、常温に至るまでの熱収縮差だけは残ると推察される。

以上の結果から、急速冷却開始時間を延長させることで、結晶化を促進させながら金型内で結晶化に伴う収縮を抑制し、さらに急速冷却することで離型後の温度低下に伴う熱収縮を抑制できることが明らかになった。

4. 結 言

成形品の収縮を抑制し精度の向上を図る「冷却速度制御による精密射出成形法」の収縮メカニズムを解明し、プロセス条件の適正化を図るため、各種樹脂の収縮特性に影響を及ぼすと考えられる4つの因子について調査し、以下の結果を得た。

- (1) 初期金型温度の影響を調査した結果、本成形法による収縮抑制効果は T_g が大きく関係し、 T_g が常温以上の結晶性樹脂は初期金型温度が T_g 以上の場合、 T_g が常温未満の結晶性樹脂は常温近傍からそれより高い場合に収縮抑制効果が得られた。一方非晶性樹脂は、離型するために初期金型温度を T_g 以下にする必要があり、収縮抑制効果を得ることができなかった。
- (2) 冷却時間の影響を調査した結果、PA 66とPBTだけが、冷却時間が30sよりも60sの方が収縮率は全般的に低下した。冷却時間の延長によって試験片の温度が低下しただけでなく、コアピンに保持される時間が延びて熱応力の緩和が進行した結果、離型後の収縮が抑制されたと推察される。
- (3) 冷却方式の影響を調査した結果、型内冷却または型外冷却によって試験片の肉厚方向に温度差が生じるため、通常冷却については T_g が低い結晶性樹脂ほど型外冷却の方が型内冷却よりも収縮率が上回った。急速冷却についてはPA 66とPBTに特徴的な特性が現れ、 T_g よりも60~70℃高い温度からそれ以上の初期金型温度で型内冷却の方が型外冷却よりも収縮率が増加した。
- (4) 急速冷却開始時間の影響を調査した結果、急速冷却開始時間を延長することで、PPの結晶化を促進させながら結晶化に伴う収縮を金型内で抑制し、さらに急速冷却することで離型後の熱収縮を抑制できることが分

かった。

以上の結果より、本成形法の理想的な成形条件は以下のように考えることができる。すなわち、①適用樹脂を結晶性樹脂とし、②緩やかな冷却速度のもとで結晶が十分に成長できる初期金型温度に設定して樹脂を充填し、③金型を開きコアピンに成形品を保持させたまま結晶化が完了するまで待機し、④その後急速冷却して離型後の熱収縮を抑制する。しかしながら本実験で明らかになった収縮特性は、冷却過程における熱応力の発生と、金型に保持されている間に進行する応力緩和を同時に考慮する必要があるものと推察される。そのためには粘弾性モデルに基づく解析が有効で、同モデルによる詳細な収縮メカニズムの解明が今後の課題とされる。

参 考 文 献

- 1) 今泉 賢：成形加工，**23**(12)，711(2011)
- 2) 曽根順治，上田勝宣，海陸嘉徳：精密工学会誌，**58**(2)，253(1992)
- 3) Tang, L. Q., Chassapis, C. and Manoochchri, S.: *Finite Elements in Analysis and Design*, **26**(3), 229 (1997)
- 4) Qiao, H.: *International Journal of Mechanical Sciences*, **48**, 430(2006)
- 5) 松森唯益，山崎光悦，土居由樹：日本機械学会論文集(C編)，**75**(760)，219(2009)
- 6) 高峰，是澤宏之，樽原弘之，鈴木 裕：精密工学会誌，**68**(6)，777(2002)
- 7) 菊池博之，小山清人：成形加工，**5**(2)，129(1993)
- 8) Kovacs, J. G. and Solymossy, B.: *Polymer Engineering and Science*, **49**(11), 2218(2009)
- 9) Shelesh-Nezhad, K. and Taghizadeh, A.: *Polymer Engineering and Science*, **47**(12), 2124(2007)
- 10) Yao, D., Chen, S. C. and Kim, B. H.: *Advances in Polymer Technology*, **27**(4), 233(2008)
- 11) Yao, D. and Kim, B.: *Polymer Engineering and Science*, **42**(12), 2471(2002)
- 12) Chen, S. C., Jong, W. R. and Chang, J. A.: *Journal of Applied Polymer Science*, **101**, 1174(2006)
- 13) 村田泰彦：成形加工，**23**(12)，700(2011)
- 14) 今泉 賢，北山二郎，田村真史，斎藤浩二：三菱電機技報，**81**(12)，803(2007)
- 15) 今泉 賢，小川瑞樹，北山二郎，横井秀俊：成形加工，**22**(10)，525(2010)
- 16) Imaizumi, M., Ogawa, M., Kitayama, J. and Yokoi, H.: *Asian Workshop on Polymer Processing* 2011, 205(2011)